

N° d'enregistrement
au C.N.R.S.
A. O. 2650

ARTICLE PRINCIPAL

recouvrant en tout

LA THÈSE DE DOCTORAT ÈS SCIENCES PHYSIQUES

présentée

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE PARIS

par

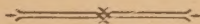
Robert FROMAGEAU

pour obtenir le grade de
DOCTEUR ÈS SCIENCES



SUJET DE LA THÈSE :

Contribution à l'étude de la recristallisation
d'échantillons polycristallins et monocristallins
déformés d'aluminium de très haute pureté.



Soutenue le *19 Novembre 1968* devant la Commission d'examen.

M. G. CHAUDRON Président

M. A. MICHEL }
M. Ph. ALBERT } Examineurs



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41554024_0019

ARTICLE PRINCIPAL

recouvrant en tout

LA THÈSE DE DOCTORAT ÈS SCIENCES PHYSIQUES

présentée

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE PARIS

par

Robert FROMAGEAU

pour obtenir le grade de
DOCTEUR ÈS SCIENCES

SUJET DE LA THÈSE :

**Contribution à l'étude de la recristallisation
d'échantillons polycristallins et monocristallins
déformés d'aluminium de très haute pureté.**

Soutenue le *19 Novembre 1968* devant la Commission d'examen.

M. G. CHAUDRON Président

M. A. MICHEL
M. Ph. ALBERT } Examinateurs

ARTICLE PRINCIPAL

REÇU LE 10/12/1913

LA THÈSE DE DOCTORAT EN SCIENCES PHYSIQUES

Présentée

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE PARIS

par

Robert FROMAGEAU

pour obtenir le grade de
DOCTEUR EN SCIENCES

SUJET DE LA THÈSE

Contribution à l'étude de la recristallisation
d'échantillons polymériques et monocristallins
déformés d'aluminium de très haute pureté.



Soutenue le 10/12/1913 devant la Commission d'examen.

M. G. CHAUDRON Président

M. A. MICHEL
M. DE ALBERT
Examinateurs

Contribution à l'étude de la recristallisation d'échantillons polycristallins et monocristallins déformés d'aluminium de très haute pureté^(*)

par R. FROMAGEAU^(**)

Il a été montré depuis de nombreuses années que dans l'aluminium, de très faibles quantités d'impuretés ont une influence sensible sur la cinétique de sa recristallisation (1). Dès le début de l'application de la purification par fusion de zone (2), il a été observé au Laboratoire de Vitry que la recristallisation de l'aluminium traité par cette méthode progresse à des températures inférieures à 0 °C (3). Des perfectionnements récents ont permis d'obtenir des échantillons dans lesquels la concentration en éléments étrangers dosés est inférieure à la partie par million (4). Nous nous proposons d'examiner l'évolution de ces échantillons d'un très haut degré de pureté au cours de recuits effectués après une forte déformation. La recristallisation sera suivie aux très basses températures par micrographie optique, diffraction des rayons X et mesure de la résistivité électrique (5). Il nous a semblé intéressant de poursuivre sur monocristaux les études réalisées sur l'aluminium polycristallin. Nous tenterons de préciser les importances relatives de deux facteurs dont les variations peuvent modifier fortement la cinétique de la recristallisation : l'orientation du réseau cristallin par rapport aux paramètres géométriques de la déformation et le degré de pureté de l'aluminium. Nous observerons en premier la recristallisation de monocristaux de même pureté, mais orientés différemment par rapport au plan et à la direction de laminage. Ensuite, nous comparerons des monocristaux de même orientation mais de puretés différentes.

Notre travail sera exposé en trois chapitres. Dans le premier nous décrirons rapidement les techniques opératoires employées. Le deuxième sera consacré à l'influence de l'orientation cristalline sur la cinétique de la recristallisation. Enfin, nous montrerons dans le troisième comment les impuretés modifient la recristallisation, qu'elles soient présentes dans l'aluminium en solution solide ou à l'état d'inclusions.

I. PURETÉ DES ÉCHANTILLONS. TECHNIQUES OPÉRATOIRES

Les échantillons d'aluminium que nous avons étudiés sont tous de très haute pureté. Nous remarquerons que les variations des propriétés observées avec le degré de pureté résultent de l'influence de très faibles écarts entre les teneurs en éléments étrangers des échantillons examinés.

Nous avons principalement utilisé un aluminium affiné par double électrolyse que nous appellerons I et un aluminium préparé par la méthode de la fusion de zone à partir de I appelé I'. La préparation des monocristaux, effectuée par solidification progressive du métal de double électrolyse provoquant une purification notable, ces échantillons possèdent un degré de pureté intermédiaire entre ceux de I et I'. Pour certaines études particulières, nous avons utilisé un aluminium de double électrolyse II de qualité inférieure à I conduisant, après traitement par fusion de zone au métal II'. D'autre part III' et IV', dont les analyses par activation indiquent des degrés de pureté supérieurs à celui de I', sont obtenus

(*) Cette publication constitue l'article principal d'une thèse de doctorat ès-Sciences Physiques soutenue le 19 novembre 1968 à la Faculté des Sciences de Paris. Le mémoire complet est déposé au C.N.R.S. sous le numéro d'enregistrement AO 2650.

(**) Centre d'Etudes de Chimie Métallurgique du C.N.R.S., 94-Vitry-sur-Seine.

à partir de deux métaux préparés par électrolyse en milieu organique III et IV.

La pureté de nos échantillons est contrôlée par mesure de la résistivité électrique à basse température. Les

TABLEAU I

Echantillons utilisés et rapports de résistivité électrique correspondants avant et après purification par fusion de zone

Aluminium de base	Double électrolyse		Electrolyse en milieu organique	
	I	II	III	IV
$\frac{R_{H_2}}{R_{amb}} \cdot 10^6$	850 - 900	1 600	(*)	(*)
Aluminium purifié par fusion de zone	I'	II'	III'	IV'
$\frac{R_{H_2}}{R_{amb}} \cdot 10^6 (**)$	360	500	285	320

(*) Les mesures de résistivité ne peuvent pas être effectuées directement sur les dépôts électrolytiques d'aluminium III et IV dont la surface est très granuleuse. Les plaquettes de ces métaux doivent être refondues au préalable, ce qui modifie leur pureté et leur résistivité électrique.

(**) Pour les métaux de fusion de zone, la valeur du rapport correspond à la partie utilisée des barreaux.

analyses par activation permettent de préciser les teneurs d'un grand nombre d'éléments (6).

Dans le tableau I, la valeur du rapport des résistivités électriques à la température d'ébullition de l'hydrogène liquide sous pression normale et à la température ambiante est indiquée pour chaque aluminium à l'état recuit. Les résultats des analyses par activation relatives à ces échantillons sont rassemblés dans le tableau II.

Nous avons tout d'abord étudié la recristallisation de polycristaux d'aluminium. Dans une éprouvette provenant d'un tel échantillon déformé par laminage, des bandes allongées suivant la direction de laminage semblent correspondre aux cristaux initiaux. Pour une température de recuit donnée et un temps de recuit défini, il est possible de trouver côte à côte des bandes présentant des états d'avancement de la recristallisation très différents. De plus, les joints de grains influençant la progression de la recristallisation, il est indispensable d'utiliser des échantillons monocristallins pour opérer dans des conditions aussi reproductibles que possible.

La plupart des barreaux d'aluminium très pur obtenus par fusion de zone sont monocristallins. Par contre, l'aluminium de double électrolyse se trouve sous la forme polycristalline. Un petit lingot de ce métal est préparé par fusion dans une nacelle de graphite très pur recouverte intérieurement d'une fine pellicule d'alumine. Ensuite, un seul déplacement rapide et régulier d'une

TABLEAU II

Impuretés principales	Métaux de base				Métaux purifiés par fusion de zone				Impuretés principales
	I	II	III	IV	I'	II'	III'	IV'	
<i>Inverses</i>									<i>Inverses</i>
Chrome	0,015-0,023	≤ 0,01	0,02	≤ 0,001	0,01	—	0,012	≤ 0,001	Chrome
Hafnium	0,004	≤ 0,01	0,001	≤ 0,0006	≤ 0,0002	—	0,0001	≤ 0,0001	Hafnium
Molybdène	≤ 0,01	0,1	≤ 0,01	≤ 0,002	≤ 0,001	0,2	≤ 0,002	—	Molybdène
Vanadium	0,07	—	—	—	≤ 0,024	—	—	—	Vanadium
Tungstène	0,001-0,002	0,01	0,001	≤ 0,002	0,0004	0,001	0,0002	0,001	Tungstène
Zirconium	≤ 0,02	1,1	≤ 0,01	—	≤ 0,01	—	≤ 0,01	≤ 0,04	Zirconium
<i>Directes</i>									<i>Directes</i>
Argent	0,004-0,04	≤ 0,1	≤ 0,001	0,01-0,04	≤ 0,001	—	≤ 0,001	≤ 0,01	Argent
Arsenic	0,006	0,15	≤ 0,00001	0,001	≤ 0,00001	0,001	≤ 0,00001	≤ 0,0001	Arsenic
Cadmium	≤ 0,01	3,5-5,5	≤ 0,01	≤ 0,006	≤ 0,0005	0,02-0,07	≤ 0,01	≤ 0,006	Cadmium
Cuivre	1,2-2	1,1-1,9	0,58	0,05-0,15	0,007	0,08	0,0024	0,004	Cuivre
Fer	1,8-2,7	3	1,5	0,33	≤ 0,05	≤ 0,2	≤ 0,03	≤ 0,05	Fer
Gallium	0,01-0,03	0,3	0,27	0,1-0,15	0,0002	0,05	0,0004	0,0015	Gallium
Manganèse	0,03-0,08	0,04-0,3	0,06	0,009	0,025	0,15	0,03	0,006	Manganèse
Sodium	0,04	1-2	3-4	5	≤ 0,01	≤ 0,2	≤ 0,01	0,01	Sodium
Antimoine	0,1-0,2	0,8-1,2	0,34	0,01-0,03	≤ 0,00001	0,002	≤ 0,00002	≤ 0,0006	Antimoine
Scandium	0,15-0,3	0,4-0,5	0,009	0,0003	0,2	0,2-0,4	0,006	0,0003	Scandium
Silicium	4-7	—	0,2-0,5	—	0,04	—	≤ 0,03	—	Silicium
Uranium	0,02	0,06	0,003	—	≤ 0,00005	≤ 0,001	≤ 0,00005	—	Uranium
Zinc	0,05-0,08	20	1	≤ 0,005	0,006	1	0,007	≤ 0,001	Zinc

Les concentrations sont exprimées en 10^{-6} en poids. Les analyses ont été effectuées par le Service d'Analyse du C.E.C.M. et sont dues plus particulièrement à Mme A. Lesbats et M. J.C. Rouchaud. Les impuretés directes migrent vers la queue des barreaux au cours du traitement de fusion de zone ; les impuretés inverses ont tendance à se rassembler en tête des lingots.

zone fondue assez large est en général suffisant pour atteindre l'état monocristallin.

Pour laminier correctement le métal jusqu'à un fort taux de réduction et respecter des conditions d'orientation précises, nous utilisons un monocristal ayant la forme d'un parallélépipède rectangle dont les faces sont des plans cristallographiques bien définis. Ce monocristal est obtenu en découpant le lingot à la scie d'horloger, ce qui ne provoque qu'un faible écrouissage superficiel. Les corrections d'orientation nécessaires sont faites à la lime et la finition est effectuée aux papiers abrasifs. La diffraction des rayons X permet de déterminer les caractéristiques angulaires des différents plans et de contrôler toutes les opérations mécaniques. La déformation provoquée par cette préparation s'étend sur une profondeur de l'ordre d'une centaine de microns. Après brillantage chimique, nous obtenons sur les diagrammes de Laue des taches identiques à celles observées sur le monocristal brut avant découpage.

Tous nos échantillons ont subi un laminage unidirectionnel dans l'azote liquide jusqu'à des taux de réduction de $97 \pm 0,05\%$. Après ce traitement, les plans cristallographiques des microfragments cristallins ne sont pas disposés au hasard. Déterminer la texture d'un tel métal, c'est indiquer quels sont les plans qui se trouvent parallèles au plan de laminage et les directions cristallographiques qui viennent en coïncidence avec la direction de laminage. Une texture simple est alors représentée par l'ensemble d'un plan et d'une direction dont les indices figurent respectivement entre des parenthèses et des crochets (*). En général, plusieurs textures se superposent, les grains présentant, suivant des proportions variables, l'une ou l'autre de ces orientations préférentielles.

La diffraction des rayons X permet l'étude des textures de déformation. Nous avons mis au point un dispositif (7) dans lequel l'éprouvette à examiner est fixée sur un porte-échantillon plongé dans l'azote liquide contenu dans un bac en polystyrène expansé, bon isolant thermique transparent aux rayons X. Le faisceau de rayons X passe un peu au-dessus du niveau du liquide et ne traverse qu'une faible épaisseur de vapeurs. Un thermocouple fixé entre l'échantillon et son support nous a permis de contrôler que la température ne s'élève jamais au-dessus de -170°C au cours de la réalisation d'un diagramme.

Afin d'explorer les figures de pôles des plans (111) et (200) nous faisons tourner l'échantillon autour de la direction de laminage et de la direction transverse. Bien que nous n'explorions pas le centre des figures de pôles, il nous est toujours possible d'identifier la texture présente dans une bande laminée.

Pour suivre la recrystallisation, plusieurs techniques peuvent être utilisées.

Le réarrangement et la disparition des défauts sont

aisément mis en évidence en examinant l'évolution de la résistivité électrique au cours de recuits isothermes ou isochrones.

Par diffraction des rayons X, après des recuits isochrones à des températures croissantes, l'apparition d'une ponctuation sur les diagrammes correspond à la formation de nouveaux grains dans la matrice déformée. Nous détectons les cristaux lorsque leur diamètre atteint 5 à 10 microns environ.

Enfin, pour l'observation micrographique, les échantillons laminés sont polis et oxydés anodiquement à basse température dans des bains composés d'acide nitrique et d'alcool méthylique (5) dont la température minimale d'emploi est de -80°C . La pellicule d'alumine épitaxiale est ensuite examinée par microscopie optique. La limite de détection des cristaux, qui est fonction des caractéristiques du microscope au grossissement choisi, correspond à un diamètre de l'ordre de 5 à 10 microns.

Nous avons considéré plusieurs paramètres caractéristiques de la cinétique de la recrystallisation.

θ_G est la température à laquelle les premières microcristallites peuvent être détectées par diffraction des rayons X après des recuits isochrones cumulatifs de 20 h à des températures croissant de 5 en 5 degrés à partir de -80°C .

V_G et V_C sont les vitesses de germination et de croissance des cristaux au sein de la « matrice écrouie ». Sur les éprouvettes oxydées, nous déterminons V_G en mesurant le nombre de germes présents dans l'unité de volume après des recuits isothermes de temps croissant. La mesure du diamètre du grain le plus gros présent dans chacun de ces échantillons permet de déterminer V_C .

Nous remarquerons que les différences entre les températures de recrystallisation des bandes observées après déformation des échantillons polycristallins influencent la détermination de V_G et de V_C . Nous mesurons dans ce cas pour la croissance une vitesse maximale, puisque le cristal le plus gros est situé dans une bande où la recrystallisation se trouve la plus avancée. Pour la germination, nous mesurons une vitesse moyenne puisque tous les cristaux de toutes les bandes contribuent à sa détermination. L'utilisation des monocristaux permet d'éviter ces inconvénients.

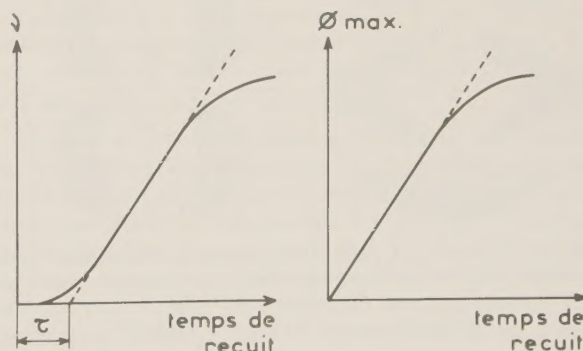


Fig. 1. — Allure des courbes qui permettent de déterminer les vitesses de germination et de croissance des cristaux.

(*) $\{h, k, l\}$ et $\langle h, k, l \rangle$ désignent un plan et une direction de type h, k, l sans préciser l'ordre et le signe des indices.

La figure 1 montre l'allure des courbes obtenues en portant le diamètre du grain le plus gros ($\varnothing$ max) et le nombre de cristaux présents par unité de volume (ν) en fonction du temps de recuit à une température T . Les pentes des portions rectilignes des deux courbes permettent de déterminer V_G et V_C . Nous constatons qu'il existe pour la germination une période d'incubation dont la durée τ est définie comme étant la distance à l'origine du point d'intersection de la tangente au point d'inflexion de la courbe et de l'axe des abscisses. Si les grains apparaissent et se développent à l'intérieur d'une « matrice écrouie » sans être gênés par leurs voisins immédiats, la croissance seule se produirait à vitesse constante.

En portant sur un diagramme les logarithmes de V_G et de V_C en fonction de l'inverse de la température de mesure, les pentes des droites obtenues permettent d'atteindre les énergies d'activation correspondantes ΔH_G et ΔH_C . Il nous est malheureusement impossible, avec les monocristaux de faible volume (1 cm^3 environ) de déterminer V_G et V_C à plus de deux températures.

II. INFLUENCE DE L'ORIENTATION CRISTALLINE

Nous avons tout d'abord comparé la texture de déformation d'un échantillon polycristallin d'aluminium de haute pureté laminé dans l'azote liquide à celle de l'aluminium moins pur déformé à température plus élevée (8) (9). Les figures de pôles obtenues pour les deux types d'échantillons sont semblables. Elles peuvent être considérées comme résultant de la dispersion des pôles autour de positions idéales en nombre limité. Sur la figure 2 nous avons envisagé trois composantes principales : $(110) [1\bar{1}2]$, $(112) [11\bar{1}]$ données par Wever (10) pour les métaux cubiques à faces centrées et $(135) [21\bar{1}]$ dont le plan est voisin de $\{123\}$.

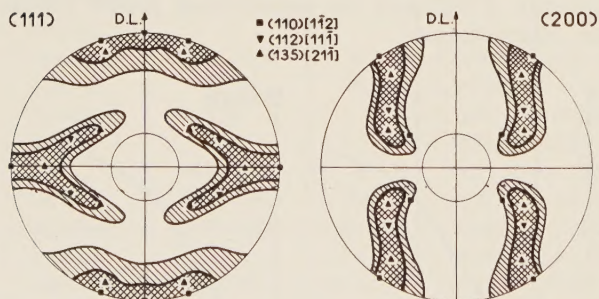


Fig. 2. — Figures de pôles (111) et (200) de l'aluminium polycristallin déformé par laminage dans l'azote liquide jusqu'à un taux de réduction de 97 %.

(Diamètre moyen des grains $0,3 \text{ mm}$) (*).

(*) Sur les figures 2, 3, 4 et 5, les régions à hachures espacées, serrées et croisées sont relatives aux zones de faible, moyenne et forte densité de pôles.

Ensuite, nous avons déformé trois échantillons monocristallins différemment orientés par rapport aux paramètres géométriques du laminage (11) :

un monocristal A d'orientation $\{111\} \langle 110 \rangle$ découpé de façon à ce qu'un plan du type (111) soit parallèle au plan de laminage et qu'une direction du type $[110]$ soit parallèle à la direction de laminage.

un monocristal B d'orientation $\{110\} \langle 111 \rangle$ et un monocristal C d'orientation $\{112\} \langle 111 \rangle$.

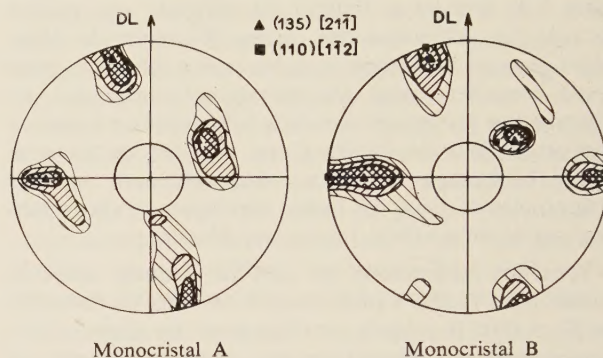


Fig. 3. — Figures de pôles (111).

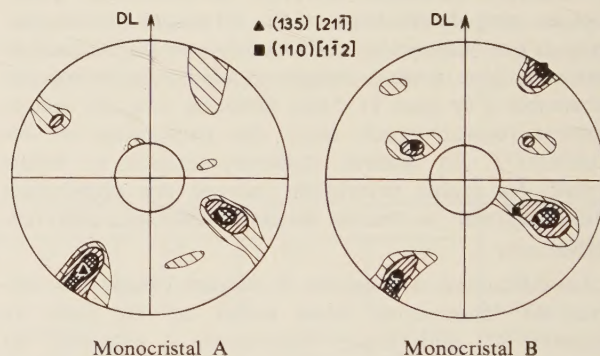


Fig. 4. — Figures de pôles (200).

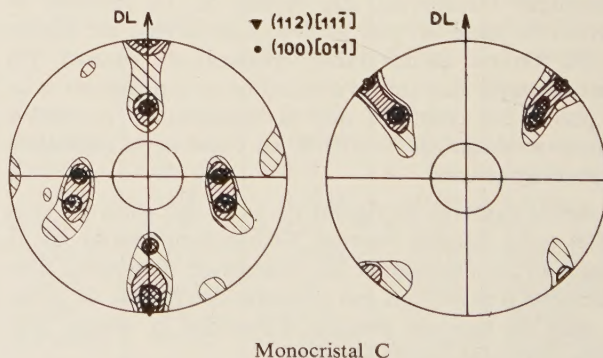


Fig. 5. — Figures de pôles (111) et (200).

Fig. 3, 4 et 5. — Figures de pôles des monocristaux A, B et C laminés dans l'azote liquide jusqu'à un taux de réduction de 97 % (*).

Orientations de A : $\{111\} \langle 110 \rangle$,
de B : $\{110\} \langle 111 \rangle$,
de C : $\{112\} \langle 111 \rangle$.

Pour les deux monocristaux A et B, les figures 3 et 4 montrent la présence de la texture voisine de $\{135\} [21\bar{1}]$. Elle est suffisante pour décrire les figures de pôles $\{111\}$ et $\{200\}$ du monocristal A déformé. Pour le monocristal B, il faut lui associer la texture $\{110\} [1\bar{1}2]$ assez voisine.

Nous ne trouvons pas de direction du type $[111]$ dans la direction de laminage. En conséquence, la troisième texture idéale envisagée dans le cas de l'aluminium polycristallin : $\{112\} [11\bar{1}]$ n'apparaît pas. L'orientation qui lui correspond a été choisie pour le découpage du monocristal C. Après déformation dans les mêmes conditions que les monocristaux A et B, nous constatons sur la figure 5 que l'orientation initiale n'est pas détruite. Une seconde texture, du type $\{100\} [011]$ très fine et bien marquée apparaît également.

Cette texture a été signalée par plusieurs auteurs (9) (12) (13) comme étant une texture de surface dans le cas du laminage d'échantillons de grande épaisseur d'aluminium polycristallin avec retournement entre les passes. Nous ne l'avons pas décelée dans nos échantillons polycristallins étudiés précédemment dans des conditions semblables. Il faut préciser que l'épaisseur finale de nos éprouvettes, après réduction jusqu'à un taux de 97 %, est de 20/100 mm environ. Nous avons procédé, sur la bande laminée provenant du monocristal C déformé, à des amincissements successifs à basse température, suivis chacun d'une détermination de la figure de pôles. Aucune modification de la texture n'a été constatée entre la surface et le cœur de l'éprouvette.

Nous pouvons superposer les figures de pôles relatives aux trois monocristaux A, B, C, en ne faisant intervenir que les zones à forte densité de pôles. En reportant les groupes de pôles dans les quatre quadrants par symétrie par rapport aux directions de laminage et transverse, car ces symétries doivent exister dans l'agrégat polycristallin, l'analogie avec la figure 2 est évidente (fig. 6). Seuls les pôles correspondant à la texture $\{100\} [011]$ observée avec le monocristal C viennent se placer dans les zones vierges des figures de pôles relatives aux polycristaux.

Haessner (14), Hibbard et Tully (15) ont indiqué pour l'aluminium que les orientations $\{110\} \langle 112 \rangle$, $\{112\} \langle 111 \rangle$,

$\{358\} \langle 523 \rangle$ et $\{123\} \langle 412 \rangle$ sont stables jusqu'à des taux de déformation élevés. Des cristaux présentant une de ces orientations la conservent après laminage. Nous avons observé les deux premières ainsi qu'une troisième voisine des deux dernières.

Compte tenu de l'imprécision de la méthode utilisant l'enregistrement photographique, les résultats obtenus sur monocristaux et polycristaux sont en assez bon accord avec les conditions indiquées par Mishin (16) dans une étude depuis la surface jusqu'au cœur d'échantillons polycristallins laminés et celle de Manenc (17) sur des monocristaux. La direction de laminage semble rester voisine des axes $[211]$ et $[533]$, les pôles du plan de laminage se répartissant dans un triangle curviligne de la projection stéréographique passant par 131 , 121 , 132 , 011 et 153 . Seule la texture $\{100\} [011]$ fait totalement exception.

Dillamore et Roberts (18) supposent que dans les métaux cubiques à faces centrées, le glissement qui se produit sur les plans octaédriques peut être accompagné de glissement dévié. En son absence, la plupart des orientations de départ conduisent à une orientation stable du type $\{110\} \langle 112 \rangle$. Elle est observée sur le laiton dans lequel les dislocations fortement dissociées empêchent le glissement dévié. Celui-ci peut intervenir par suite d'une élévation du taux ou de la température de la déformation. Des dispersions comparables à celles trouvées en déformant les métaux purs comme le cuivre sont alors atteintes, l'orientation finale est $\{112\} \langle 111 \rangle$. Le schéma d'évolution serait :

type laiton (alliage) $\rightarrow$ type cuivre (métal pur)
 $\rightarrow \{112\} \langle 111 \rangle$.

A une température et un taux de déformation donnés, la proportion de glissement dévié dépend de l'énergie de défaut d'empilement. Si cette énergie est faible, le glissement dévié est difficile et à basse température la texture principale est du type laiton : $\{110\} \langle 112 \rangle$. Ces considérations peuvent expliquer la différence observée entre les textures de déformation de l'argent (type laiton) et de l'aluminium dont les énergies de défaut d'empilement sont respectivement 25 et 200 ergs/cm².

La préparation des monocristaux A, B et C provoque une légère purification de l'aluminium de base I (tabl. I). Les valeurs de leur rapport de résistivité R_{H_2}/R_{amb} sont comprises entre 600 et $700 \cdot 10^{-6}$.

Nous avons rassemblé dans le tableau III les valeurs des paramètres caractéristiques de la cinétique de la recrystallisation de ces trois monocristaux et d'un échantillon polycristallin d'aluminium I ayant subi la même déformation. Les monocristaux A et B, peu différenciés par leurs textures de laminage, présentent des comportements très voisins en cours de recrystallisation. Le monocristal C dont la texture de déformation est différente, se distingue nettement des deux précédents par sa température θ_G et ses vitesses V_G et V_C . Dans le cas du polycristal, la valeur de θ_G est identique à celle trouvée

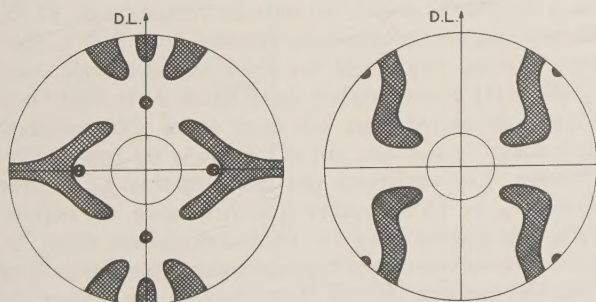


Fig. 6. — Superposition des figures de pôles $\{111\}$ et $\{200\}$ des monocristaux A, B et C (Seules les zones à forte densité de pôles sont reportées dans les quatre quadrants).

TABLEAU III

Influences de l'orientation cristalline et du degré de pureté sur la cinétique de la recristallisation d'échantillons monocristallins déformés par laminage dans l'azote liquide jusqu'à un taux de réduction de 97 %

	$V_G (\text{cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1})$		$V_C (\text{cm} \cdot \text{s}^{-1})$		ΔH_G (cal/at.g)	ΔH_C (cal/at.g)	θ_G (°C)
	0 °C	-30°C	0°C	-30°C			
Aluminium I polycristallin	380	20	$3,9 \cdot 10^{-5}$	$13 \cdot 10^{-7}$	14 000	14 000	- 60
Monocristal A	330	14	$1,8 \cdot 10^{-5}$	$10 \cdot 10^{-7}$	13 900	12 600	- 45
Monocristal B	265	13	$1,0 \cdot 10^{-5}$	$4,6 \cdot 10^{-7}$	13 200	13 500	- 40
Monocristal C	28 500	970	$10,6 \cdot 10^{-5}$	$43 \cdot 10^{-7}$	14 800	14 000	- 60
Monocristal B'	8 400	290	$8,0 \cdot 10^{-5}$	$47 \cdot 10^{-7}$	14 800	12 500	- 55
Monocristal C'	160 000	5 600	$10 \cdot 10^{-5}$	$70 \cdot 10^{-7}$	14 700	12 000	- 65

pour le monocristal C. Elle ne reflète pas, comme V_G , le comportement de l'échantillon tout entier mais elle se rapporte à la bande dans laquelle la recristallisation est la plus rapide. Si nous supposons que les grains du polycristal étudié présentent toutes les orientations possibles, $\{112\}$ $\langle 111 \rangle$ serait une de celles qui correspondrait aux valeurs des vitesses de recristallisation les plus élevées.

L'énergie d'activation relative à la germination ΔH_G a une valeur moyenne de 14 000 cal/at. g. L'énergie de croissance ΔH_C des monocristaux semble un peu plus faible que celle relative au métal de base, ce qui peut être attribué à la légère purification due à leur préparation.

Ces résultats sont en accord avec ceux de Hibbard et Tully (15) qui ont observé la recristallisation de monocristaux de cuivre fortement laminés. L'orientation initiale la plus favorable à une recristallisation rapide serait celle du monocristal C (112) $[1\bar{1}1]$. Nous trouvons ensuite, dans le sens des vitesses décroissantes, (358) $[523]$, (321) $[2\bar{1}4]$ et enfin (110) $[1\bar{1}2]$ voisine de l'orientation du monocristal B(*) qui conduirait aux vitesses les plus faibles.

Le classement de ces quatre orientations suivant l'évolution des vitesses de recristallisation est le même que celui indiqué pour la formation des textures de laminage faisant intervenir une proportion croissante de glissement dévié :

$\{110\}$ $\langle 112 \rangle$ (type laiton) $\rightarrow$ type cuivre $\rightarrow \{112\}$ $\langle 111 \rangle$

Ce mode de glissement introduirait une quantité d'énergie élevée à l'intérieur du réseau cristallin.

Nous avons vu que lorsque θ_G augmente, V_G et V_C diminuent. Les vitesses de germination paraissent être beaucoup plus affectées que les vitesses de croissance par

le facteur orientation. Les énergies d'activation de germination et de croissance semblent beaucoup moins sensibles à ce facteur.

III. INFLUENCE DU DEGRÉ DE PURETÉ

Nous avons comparé les cinétiques de la recristallisation de monocristaux de même orientation, mais de puretés différentes. La valeur du rapport de résistivité électrique des monocristaux étudiés au paragraphe précédent est assez proche de celle obtenue pour l'aluminium de base I. Nous appliquons à ce même métal un traitement de purification par fusion de zone qui consiste en dix passages effectués à une vitesse de déplacement de 20 mm/h suivis d'un changement du métal de queue et de dix nouveaux passages à 5 mm/h (19). Dans le barreau d'aluminium I' obtenu, nous découpons deux monocristaux B' et C' de même orientation que les monocristaux B et C. Leur rapport de résistivité a une valeur de $360 \cdot 10^{-6}$ (tabl. I). L'analyse de ce métal figure dans le tableau II.

Les textures de déformation de B' et C', après laminage à -196 °C jusqu'à un taux de réduction de 97 % sont très voisines de celles des monocristaux B et C. Par contre, comme l'indiquent les résultats rassemblés dans le tableau III et les courbes de la figure 7, la différence du degré de pureté entre ces deux séries d'échantillons a une action importante sur la cinétique de leur recristallisation. Les variations des températures θ_G et des vitesses V_G et V_C montrent que l'influence de l'orientation, très grande pour les monocristaux de métal de double électrolyse, apparaît relativement plus faible dans le cas des métaux de très haute pureté. La valeur de la vitesse de croissance dépend alors étroitement du degré de pureté. Comme nous l'avons déjà remarqué pour l'orientation, l'influence du degré de pureté est

(*) L'orientation (110) $[1\bar{1}1]$ se déduit en effet de (110) $[1\bar{1}2]$ par une rotation de $19^\circ 28'$ dans le plan de laminage.

beaucoup plus importante sur les vitesses de germination que sur les vitesses de croissance des cristaux.

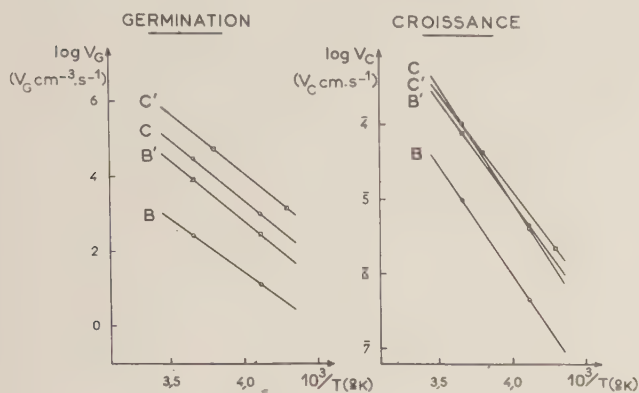


Fig. 7. — Variation des vitesses de germination et de croissance des cristaux avec la température dans l'aluminium monocristallin.

Influences de l'orientation cristalline et du degré de pureté.

Orientations de B et B' : $\{110\}$ $\{111\}$,
de C et C' : $\{112\}$ $\{111\}$.

Les valeurs des énergies d'activation de germination et de croissance sont déduites des pentes des droites de la figure 7. Lorsque la pureté augmente, la valeur de ΔH_G reste inchangée, de l'ordre de 14 500 cal/at.g, alors que celle de ΔH_C diminue. Ainsi, pour un métal d'origine déterminée, la valeur de ΔH_G semble indépendante de la variation de l'orientation cristalline et de l'augmentation du degré de pureté qui accompagne le traitement de fusion de zone.

L'évolution de la résistivité électrique pour les monocristaux C et C', après des recuits isochrones de 60 mn à des températures comprises entre -90 et 0°C , est représentée sur la figure 8 (4). La première diminution importante du rapport des résistivités électriques aux températures d'ébullition de l'hydrogène et de l'azote liquides sous pression normale : R_{H_2}/R_{N_2} , attribuée à l'élimination des défauts ponctuels, est identique pour les deux échantillons. La seconde, relative à la recrystallisation, les différencie. Pour le monocristal C', la recrystallisation est plus rapide et la chute du rapport R_{H_2}/R_{N_2}

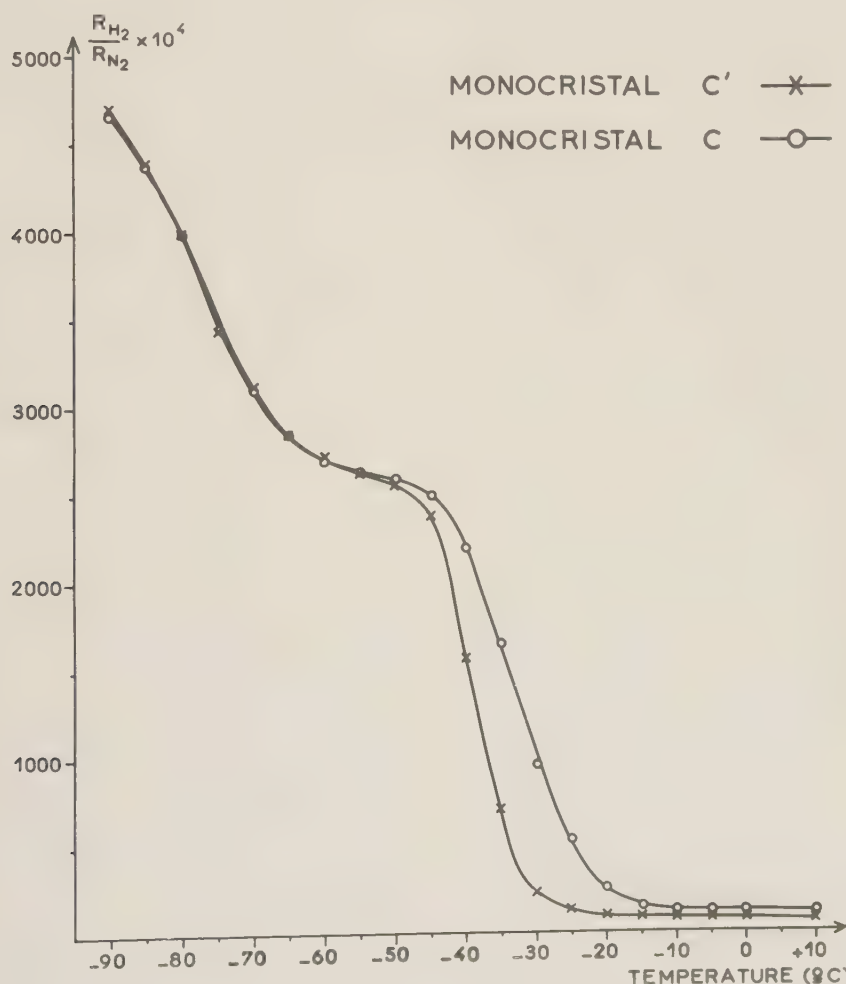


Fig. 8. — Variation de la résistivité électrique avec la température de recuit de deux monocristaux de même orientation mais de degrés de pureté différents, après laminage dans l'azote liquide.

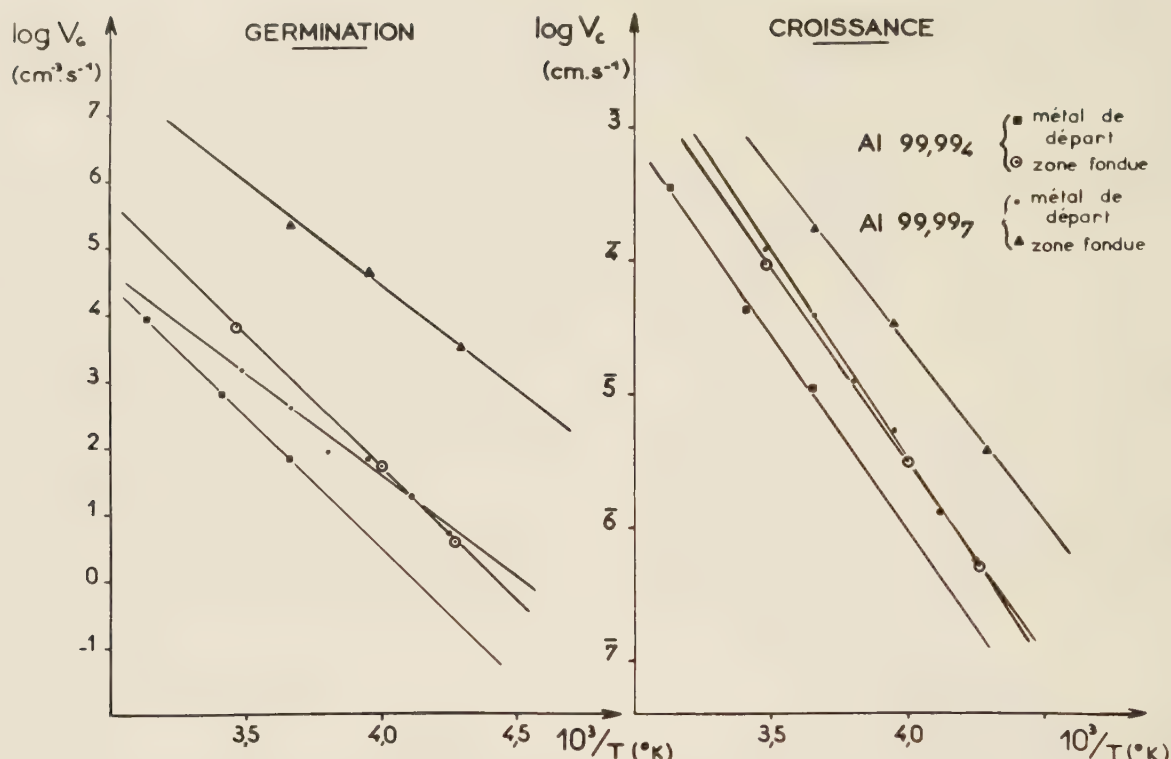


Fig. 9. — Variation des vitesses de germination et de croissance des cristaux avec la température dans l'aluminium polycristallin avant et après purification.

se produit vers des températures sensiblement plus basses.

Il est important de remarquer que des échantillons monocristallins de métal de fusion de zone peuvent recristalliser moins rapidement que des monocristaux de métal beaucoup moins pur, ainsi que le montrent les courbes relatives à la germination des échantillons B' et C de la figure 7. L'influence de l'orientation peut donc, dans certains cas, devenir prédominante.

Nous avons ensuite observé l'influence du degré de pureté sur la recristallisation d'échantillons polycristallins. Pour comparer des métaux de base, il faut éviter la purification qui intervient au cours de la préparation des monocristaux. Nous avons principalement porté notre attention sur les énergies d'activation qui semblent indépendantes de l'orientation. Quatre polycristaux ont été laminés à -196°C jusqu'à un taux de réduction de 97 % (20). Les métaux utilisés sont les aluminiums de double électrolyse I et II, de titres estimés 99,99₇ et 99,99₄ et les métaux de fusion de zone correspondants I' et II' (tabl. I et II). La recristallisation de l'aluminium II' a été étudiée par Dimitrov (5) (21). Comme dans le cas des monocristaux, nous voyons sur les courbes de la figure 9 que la vitesse de croissance semble moins affectée que celle de germination par la variation du degré de pureté. L'énergie d'activation pour la croissance ΔH_C diminue lorsque la pureté augmente. L'énergie de germination ΔH_G est peu sensible à l'accroissement du degré de pureté introduit par le traitement de

fusion de zone, mais semble dépendre du choix du métal initial.

Les valeurs de ΔH_C et de ΔH_G pour les quatre échantillons sont reportées dans le tableau suivant :

Aluminium	ΔH_G (cal/at. g)	ΔH_C (cal/at. g)
I (99,99₇)	14 000	14 000
I'	14 300	12 200
II (99,99₄)	18 300	13 500
II'	18 000	13 100

Remarque. — Au cours de cette étude, nous avons constaté que les durées d'incubation de la germination sont notablement différentes suivant les échantillons. La figure 10 représente la variation du logarithme de τ en fonction de l'inverse de la température de recuit pour les aluminiums I et II polycristallins et pour les monocristaux B, C et C'. La droite relative au monocristal B' s'intercale entre celles correspondant à l'aluminium I et à C, elle est très voisine de cette dernière. L'ensemble de ces droites montre que la valeur de τ dépend du degré de pureté et de l'orientation cristalline. D'une manière générale, la durée d'incubation diminue lorsque les vitesses de germination et de croissance des cristaux augmentent (fig. 11).

Pour tenter de mettre en évidence le rôle de très faibles variations du degré de pureté et surtout l'influence

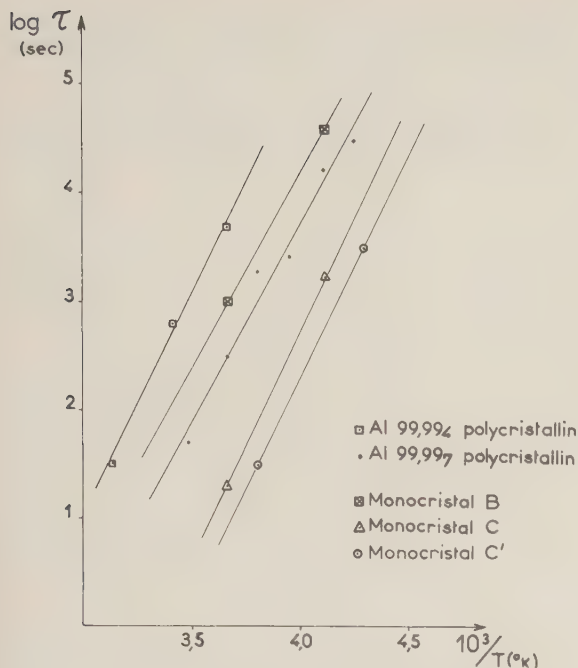


Fig. 10. — Variation du temps d'incubation relatif à la germination des cristaux avec la température.

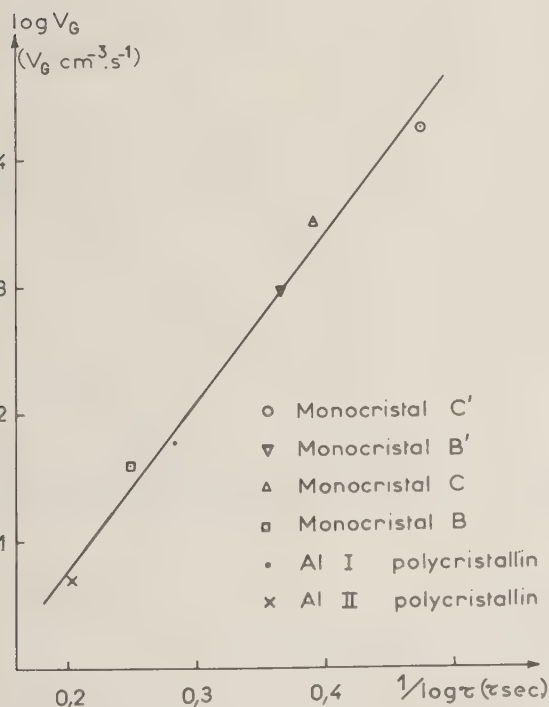


Fig. 11. — Relation entre la vitesse et le temps d'incubation relatifs à la germination des cristaux à -20°C .

de la nature des impuretés, plusieurs monocristaux ont été prélevés le long d'un barreau purifié par fusion de zone. Celui-ci est préparé à partir de l'aluminium I qui a subi un traitement de dix passages de zone effectués à une vitesse de déplacement de 5 mm/h. La courbe de

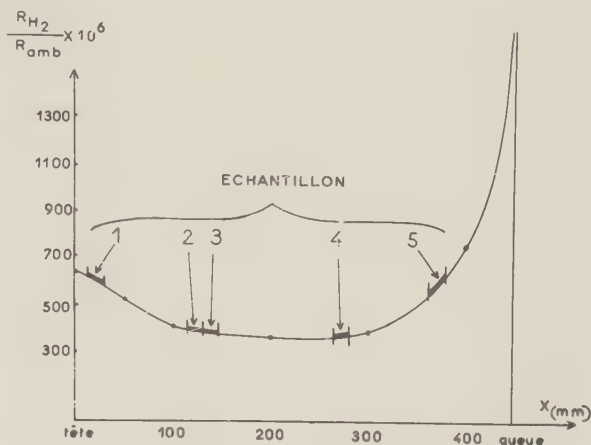


Fig. 12. — Variation de la résistivité électrique et positions des cinq prélèvements monocristallins le long du barreau.

la figure 12 représente la variation de la résistivité électrique du métal à l'état recuit, avant déformation, en fonction de la distance à la tête du lingot. Les valeurs du rapport R_{H_2}/R_{amb} sont $590 \cdot 10^{-6}$ pour les monocristaux 1 et 5 et $380 \cdot 10^{-6}$ pour les échantillons 2, 3 et 4. Des analyses par activation ont été effectuées sur des prélèvements faits de part et d'autre de chaque monocristal. Le tableau IV montre que pour une même valeur du rapport R_{H_2}/R_{amb} , la composition en impuretés des échantillons peut être très différente selon leur position le long du barreau. Les comportements des cinq monocristaux après laminage dans l'azote liquide jusqu'à un taux de réduction de 97 % peuvent être comparés valablement sans tenir compte de leurs différences d'orientation (22) (23).

Les courbes de la figure 13 représentent la variation du rapport R_{H_2}/R_{N_2} en fonction du temps de recuit à -40°C pour les cinq monocristaux. Après un pre-

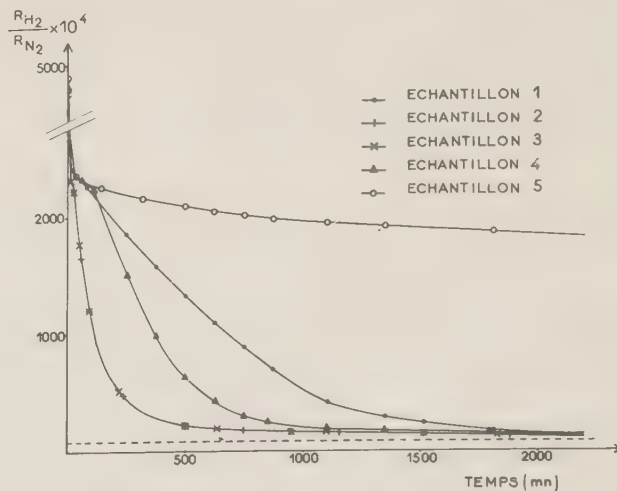


Fig. 13. — Variation de la résistivité électrique en fonction du temps de recuit à -40°C après déformation dans l'azote liquide.

TABLEAU IV

Concentrations d'impuretés dans les cinq monocristaux en fonction de leur position le long du barreau.

Impuretés principales	Concentrations exprimées en 10^{-6} en poids dans les prélèvements			
	1	2 3	4	5
<i>Inverses</i>				
Chrome	0,012	0,007	0,001	0,002
Hafnium	0,016	0,01	$\leq 0,0003$	$\leq 0,0003$
Molybdène	0,004	$\leq 0,0007$	$\leq 0,001$	—
Tungstène	0,003	0,001	$\leq 0,0002$	$\leq 0,0001$
Zirconium	$\leq 0,2$	$\leq 0,1$	$\leq 0,1$	$\leq 0,04$
<i>Directes</i>				
Argent	$\leq 0,0001$	$\leq 0,008$	0,005	0,004
Arsenic	$\leq 0,0001$	$\leq 0,0006$	$\leq 0,0001$	0,003
Cadmium	$\leq 0,004$	$\leq 0,1$	$\leq 0,05$	$\leq 0,03$
Cuivre	0,02	0,01	0,07	2,2
Fer	$\leq 0,025$	$\leq 0,03$	$\leq 0,05$	1,8
Gallium	$\leq 0,0002$	$\leq 0,0003$	0,0008	0,02
Manganèse	0,035	0,022	0,055	0,09
Sodium	—	$\leq 0,01$	—	$\leq 0,02$
Antimoine	$\leq 0,001$	$\leq 0,0003$	$\leq 0,00005$	0,003
Scandium	0,11	0,13	0,18	0,47
Silicium	—	$\leq 0,2$	0,3	1,8
Zinc	$\leq 0,01$	$\leq 0,06$	0,015	0,04

mier stade d'évolution semblable pour tous les échantillons, correspondant à l'élimination des défauts ponctuels, la recristallisation progresse à des vitesses très différentes, même pour les échantillons qui présentent une valeur identique du rapport R_{H_2}/R_{amb} avant déformation.

D'après le tableau IV, les échantillons 1, 2, 3 et 4 ont des teneurs globales en impuretés voisines, inférieures à la partie par million en poids. Seul, l'échantillon 5 se distingue avec une teneur de $6,5 \cdot 10^{-6}$ environ. Le monocristal 4 évolue plus rapidement que le monocristal 1 bien que sa teneur globale en impuretés soit supérieure de quelques dixièmes de partie par million. Il semblerait donc que les impuretés inverses aient

une influence beaucoup plus importante que les impuretés directes sur la cinétique de la recristallisation. Ces impuretés qui sont toutes, dans le cas de l'aluminium, des éléments de transition, possèdent également des coefficients d'influence sur la résistivité électrique environ dix fois plus grands que ceux relatifs aux impuretés directes.

Grâce aux courbes de variation de la résistivité électrique, il est possible de suivre de façon très sensible la recristallisation de l'aluminium de haute pureté. Ces courbes mettent en évidence l'influence sur ce phénomène de très faibles traces d'impuretés. Par contre, ni la valeur de la résistivité à l'état parfaitement recristallisé, avant déformation, ni la teneur globale en impuretés ne permettent de prévoir exactement quelle sera la cinétique de recristallisation des échantillons à étudier.

Pour les cinq monocristaux, les valeurs mesurées des paramètres caractéristiques de cette cinétique définis précédemment sont rassemblées dans le tableau V. Dans l'intervalle de température considéré, le monocristal 5 présente la température θ_G la plus élevée, les vitesses V_G et V_C les plus faibles et les durées d'incubation les plus longues à l'inverse des monocristaux 2 et 3. La figure 14 permet de comparer les valeurs de V_G , V_C , τ , ΔH_G , ΔH_C et θ_G suivant la distance du prélèvement à la tête du lingot. Pour V_G , V_C et τ , les valeurs se rapportant à une température de -25°C sont déduites des courbes représentant les variations de ces paramètres en fonction de l'inverse de la température.

D'après les courbes d'évolution de la résistivité électrique de la figure 13, nous pouvons classer les cinq monocristaux suivant la rapidité de leur recristallisation. Suivant cet ordre, la valeur de V_G est indiquée pour chaque monocristal dans le tableau ci-dessous.

Numéro des prélèvements	5	1	4	2 - 3
V_G à -25°C ($\text{cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$)	23	300	1 800	20 000 à 45 000

L'accord entre les deux méthodes est donc pleinement satisfaisant. Les vitesses de germination sont beaucoup plus influencées que les vitesses de croissance par la

TABLEAU V

Valeurs des paramètres caractéristiques de la cinétique de la recristallisation des cinq monocristaux après déformation par laminage jusqu'à un taux de réduction de 97 % à -196°C

Prélèvements	$\theta_G (^\circ\text{C})$	$V_G (\text{cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1})$		$V_C \cdot 10^6 (\text{cm} \cdot \text{s}^{-1})$		τ (secondes)		ΔH_G (cal/at.g)	ΔH_C (cal/at.g)
		-10°C	-40°C	-10°C	-40°C	-10°C	-40°C		
1	-60	1 800	40	29	1,5	115	3 000	15 500	12 000
2	65	120 000	2 450	63	3,5	24,5	1 100	15 700	11 700
3	-65	265 000	6 300	69	3,6	26,5	910	15 200	11 900
4	-60	11 500	235	33	1,3	220	7 250	15 800	13 200
5	-40	140	3,0	5,4	0,125	2 050	280 000	15 700	15 600

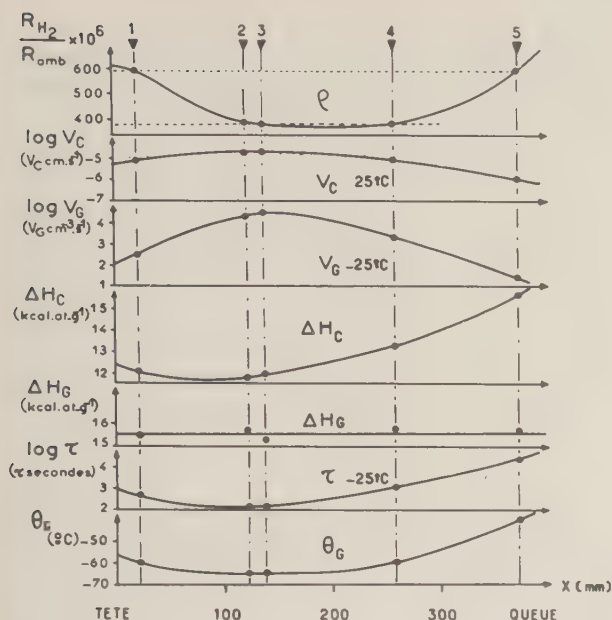


Fig. 14. — Variation des paramètres caractéristiques de la cinétique de la recrystallisation des cinq monocristaux suivant leur position le long du barreau.

présence de faibles quantités d'impuretés dans le métal. Une différence de quelques dixièmes de partie par million en impuretés inverses entre les échantillons 1 et 2 est suffisante pour faire varier V_G d'un facteur d'ordre 100.

D'après le tableau V, nous pouvons remarquer que l'énergie d'activation relative à la germination ΔH_G , constante de la tête à la queue du barreau, paraît insensible au traitement de purification par fusion de zone. Par contre, l'énergie de croissance ΔH_C qui augmente de 12 000 à 15 500 cal/at. g entre les monocristaux 2 et 5 semble être reliée à la teneur en éléments étrangers. Les variations du degré de pureté influencent de façon identique τ et θ_G , les valeurs de ces deux paramètres diminuent lorsque la pureté du métal augmente.

Tous les paramètres envisagés, hormis l'énergie d'activation relative à la germination, sont sensibles à la présence des impuretés directes et encore plus à celle des impuretés inverses. Les comportements très voisins

des échantillons 2 et 3 prouvent la bonne reproductibilité de nos mesures.

Par observation micrographique nous pouvons remarquer que, pour chaque monocristal, l'augmentation du temps de recuit à une certaine température entraîne un accroissement du diamètre moyen des grains. Quelle que soit la fraction de surface recrystallisée, les grains les plus petits correspondent toujours aux monocristaux que les analyses par activation indiquent comme étant les plus purs.

Pour tout échantillon déformé et recuit nous connaissons le diamètre moyen des grains de recrystallisation et le nombre de ces grains présents par unité de surface. Nous pouvons donc calculer pour chaque temps de recuit t à une même température T la fraction de surface recrystallisée X par rapport à la surface totale de l'échantillon. Au moyen des courbes représentant la variation de X en fonction de t , il est possible de déter-

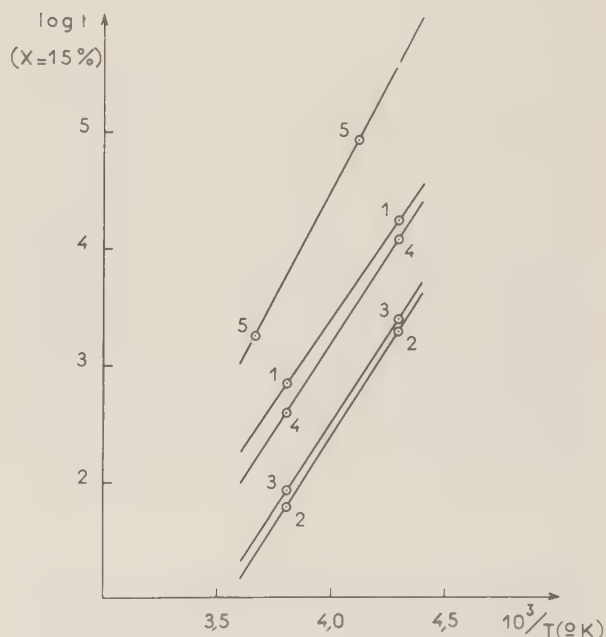


Fig. 15. — Variation avec la température du temps nécessaire pour que la fraction de surface recrystallisée soit égale à 15 %.

TABLEAU VI

Temps nécessaire pour atteindre $X = 15\%$
et énergie d'activation relative à la recrystallisation pour les cinq monocristaux

Prélèvements	$t_{(X=15\%)} \text{ (secondes)}$				ΔH_R (cal/at.g)	ΔH_G (cal/at.g)	ΔH_C (cal/at.g)
	- 40°C	- 30°C	- 10°C	0°C			
1	18 000		700		13 200	15 500	12 000
2	2 000		60		14 100	15 700	11 700
3	2 500		85		13 900	15 200	11 900
4	12 200		390		14 100	15 800	13 200
5		88 200		1 800	17 300	15 700	15 600

miner quel est le temps de recuit nécessaire pour atteindre une certaine proportion de surface recristallisée à une température T . Nous avons arbitrairement choisi pour X la valeur de 15 % qui correspond, pour tous les échantillons, à un temps t compris dans l'intervalle de temps pendant lequel la germination progresse à vitesse constante. La courbe de la figure 15 représente la variation du logarithme du temps nécessaire pour atteindre $X = 15\%$ en fonction de l'inverse de la température.

Nous avons rassemblé dans le tableau VI les valeurs de $t_{(X=15\%)}$ aux températures de recuit -40°C et -10°C pour les quatre premiers monocristaux et à -30°C et 0°C pour l'échantillon 5. Les mesures des fractions de surfaces recristallisées à deux températures permettent de calculer approximativement une énergie d'activation du phénomène de recristallisation : ΔH_R sans distinguer la germination et la croissance. Les valeurs de ΔH_R qui figurent dans le tableau VI sont, pour les quatre échantillons les plus purs, intermédiaires entre les valeurs des énergies d'activation relatives à la germination ΔH_G et à la croissance ΔH_C . Ce résultat peut être prévu d'après la théorie sur la cinétique des changements de phase d'Avrami (24) et la formule de Johnson et Mehl (25) qui conduit à :

$$\Delta H_R = \frac{3 \Delta H_C + \Delta H_G}{4}$$

Enfin, pour étudier le comportement de l'aluminium de degré de pureté encore plus élevé, nous avons utilisé un métal de fusion de zone préparé à partir d'un aluminium ne provenant pas d'un affinage par double électrolyse selon le procédé aux trois couches, mais d'une électrolyse en milieu organique (26). L'électrolyte est le complexe formé par le fluorure de sodium et par l'aluminium triéthyle : NaF , $2 \text{Al}(\text{C}_2\text{H}_5)_3$ en solution dans le toluène (27). Ce métal se distingue des métaux de double électrolyse par sa teneur particulièrement faible en scandium, impureté directe difficilement éliminée au cours du traitement par fusion de zone.

Deux aluminums de base III et IV conduisent, après purification, aux métaux III' et IV' (tabl. I). Les résul-

tats des analyses par activation correspondantes sont rassemblés dans le tableau II. Les mesures de résistivité électrique ont été effectuées le long des deux barreaux et pour les prélèvements faits à 200 mm de la tête, les valeurs du rapport R_{H_0}/R_{amb} sont respectivement $285 \cdot 10^{-6}$ pour III' et $320 \cdot 10^{-6}$ pour IV'. L'écart entre ces deux rapports résulte principalement du fait que l'aluminium III' a subi le traitement complet appliqué à l'aluminium I' alors que le traitement du métal IV' consiste seulement en dix passages à 5 mm/h.

Les résultats des analyses par activation ainsi que les mesures de la conductibilité électrique à basse température semblent prouver que ces deux métaux possèdent un degré de pureté supérieur à celui des métaux étudiés précédemment.

Deux monocristaux prélevés sur les barreaux d'aluminium III' et IV' sont découpés de manière à présenter l'orientation cristalline du type C étudiée antérieurement puis sont laminés jusqu'à un taux de réduction de 97 % dans l'azote liquide. Nous avons rassemblé dans le tableau VII les résultats des mesures des paramètres caractéristiques de la cinétique de la recristallisation de ces monocristaux et rappelé les valeurs relatives aux monocristaux C et C' de même orientation. Contrairement à ce que nous pouvions prévoir, les températures θ_G et les durées d'incubation τ sont plus élevées et les vitesses V_G et V_C plus faibles en comparaison des mesures effectuées sur le monocristal C'. Les énergies d'activation relatives à la germination sont très voisines pour tous les échantillons tandis que l'énergie de croissance semblerait indiquer pour les deux monocristaux d'aluminium III' et IV' un degré de pureté légèrement inférieur à celui du monocristal C'.

La figure 16 qui représente la variation des vitesses V_G avec la température montre qu'un monocristal préparé par fusion de zone (IV' orientation C) peut se comporter comme un monocristal d'aluminium de double électrolyse de degré de pureté inférieur (B) bien que l'orientation suivant laquelle il est déformé soit favorable à une recristallisation beaucoup plus rapide. Les résultats des analyses par activation dont nous disposons et les mesures de la résistivité électrique ne sont donc pas

TABLEAU VII

Valeurs des paramètres caractéristiques de la cinétique de la recristallisation des deux monocristaux d'aluminium III' et IV' et rappel des valeurs relatives aux monocristaux C et C'.
Les quatre échantillons possèdent la même orientation du type C.

	$\theta_G (^\circ\text{C})$	$V_G (\text{cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1})$		$V_C \cdot 10^6 (\text{cm} \cdot \text{s}^{-1})$		τ (secondes)		ΔH_G (cal/at.g)	ΔH_C (cal/at.g)
		0°C	-30°C	0°C	-30°C	0°C	30°C		
Monocristal C'	-65	160 000	5 600	100	7	8	600	14 700	12 000
Monocristal C	-60	28 500	970	106	4,3	20	1 800	14 800	14 000
Monocristal d'Aluminium III'	-60	24 000	800	83	4,4	100	4 600	14 800	13 000
Monocristal d'Aluminium IV'	-50	1 450	51	1,2	1,2	500	22 000	14 800	13 200

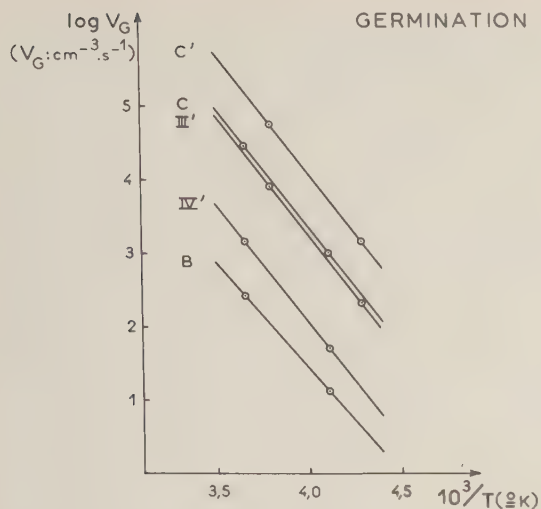


Fig. 16. — Variation de la vitesse de germination des cristaux avec la température pour les monocristaux d'aluminium III' et IV' d'orientation du type C comparés aux monocristaux B, C et C'.

suffisants pour prévoir avec précision quelle sera la cinétique de la recrystallisation après déformation.

Pour expliquer le comportement inattendu des monocristaux d'aluminium III' et IV' nous avons envisagé la présence, dans ces échantillons, d'une impureté non encore dosée. Cette impureté ne se trouverait probablement pas en solution solide dans l'aluminium car dans ce cas, la résistivité électrique serait fortement altérée. L'aluminium étudié contiendrait donc une seconde phase sous forme d'inclusions.

Afin de vérifier cette hypothèse, nous avons observé par microscopie électronique l'aluminium totalement recrystallisé provenant des bandes laminées à basse température. L'amincissement du métal est effectué par polissage électrolytique au bain de Jacquet ou par brillantage chimique. Dans les lames minces d'aluminium III' et IV', des taches noires sont visibles quelle que soit l'inclinaison du faisceau électronique sur la surface de l'échantillon (fig. 17). Elles constituent des points



Fig. 17.

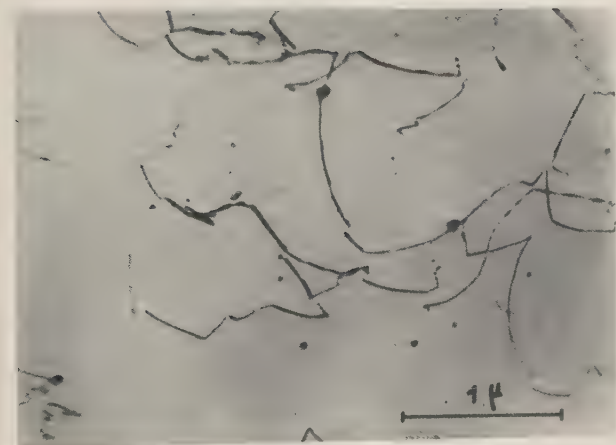


Fig. 18.

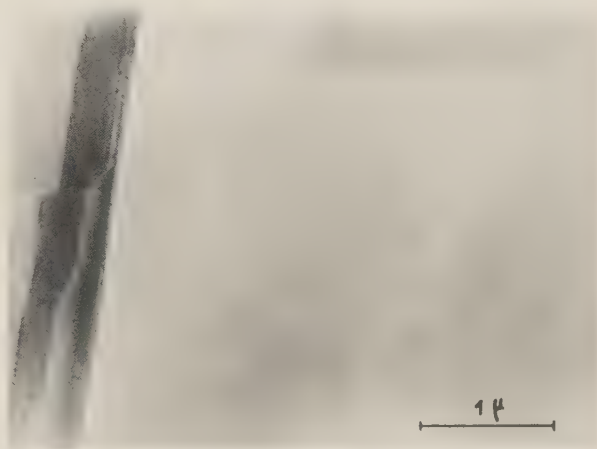


Fig. 19.

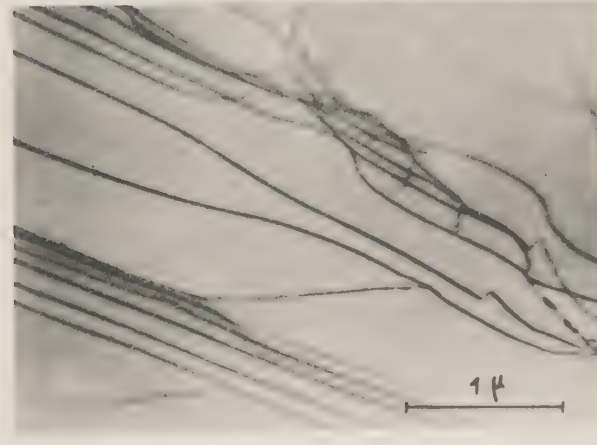


Fig. 20.

Fig. 17 et 18. — Présence de précipités et interaction de ceux-ci avec les dislocations dans un aluminium ayant subi une électrolyse dans un milieu organique et une purification par fusion de zone.

Fig. 19 et 20. — Absence de précipités dans un aluminium ayant subi une double électrolyse classique et une purification par fusion de zone.

d'ancrage des dislocations dans les régions ayant subi un léger écrouissage au cours de la préparation des lames minces (fig. 18). Nous avons vérifié que ces particules sont présentes dans les barreaux de métal d'origine organique purifié, avant déformation. Par contre, dans l'aluminium de fusion de zone préparé à partir du métal de double électrolyse nous ne décelons aucun défaut de ce type (fig. 19 et 20).

Zener (28) puis Burke et Turnbull (29) ont montré que la force de freinage s'exerçant sur un joint de grain en cours de migration dépend de la taille des particules qui sont présentes dans le métal. La germination et la croissance des cristaux seront influencées par la finesse et le degré de dispersion de la seconde phase. En général, une phase finement dispersée gêne le mouvement des dislocations et des joints de grand angle : elle ralentit le processus de recristallisation dans son ensemble. Nous avons mis cette influence en évidence mais la nature des inclusions n'a pas été déterminée jusqu'à présent. Nous supposons que l'impureté présente doit être recherchée parmi les métalloïdes. En effet, certains de ces éléments échappent à nos contrôles tant par mesure de la résistivité électrique que par analyse par activation. Le plus probable d'entre eux est l'oxygène car des parcelles d'alumine peuvent être introduites dans les lingots pré-

parés par fusion des dépôts électrolytiques III et IV dont la surface est très granuleuse. Dans cette hypothèse, la concentration en oxygène déduite des observations des lames minces par microscopie électronique varierait de 10 à 300 parties par million en poids. Cependant, des analyses par activation semblent indiquer que les teneurs en oxygène sont nettement inférieures à ces valeurs et du même ordre de grandeur dans tous les aluminiums de fusion de zone étudiés (30). L'impureté présente serait alors un autre métalloïde, le carbone par exemple.

Remarque. — La simple mesure de la température de détection des premières microcristallites par diffraction des rayons X permet de prévoir de façon assez précise la valeur des différents paramètres caractéristiques de la cinétique de la recristallisation. Pour les monocristaux, nous pouvons tracer les courbes de variation de V_G et V_C en fonction de l'inverse de la température θ_G représentative de la totalité du volume de l'échantillon. La figure 21 montre que les vitesses de germination peuvent être évaluées à un facteur 3 près environ, excepté pour le monocristal 1 étudié au paragraphe précédent, ce facteur est très inférieur à 2 pour les vitesses de croissance. Il est donc possible de choisir convenablement les températures auxquelles devront être effectués les recuits.

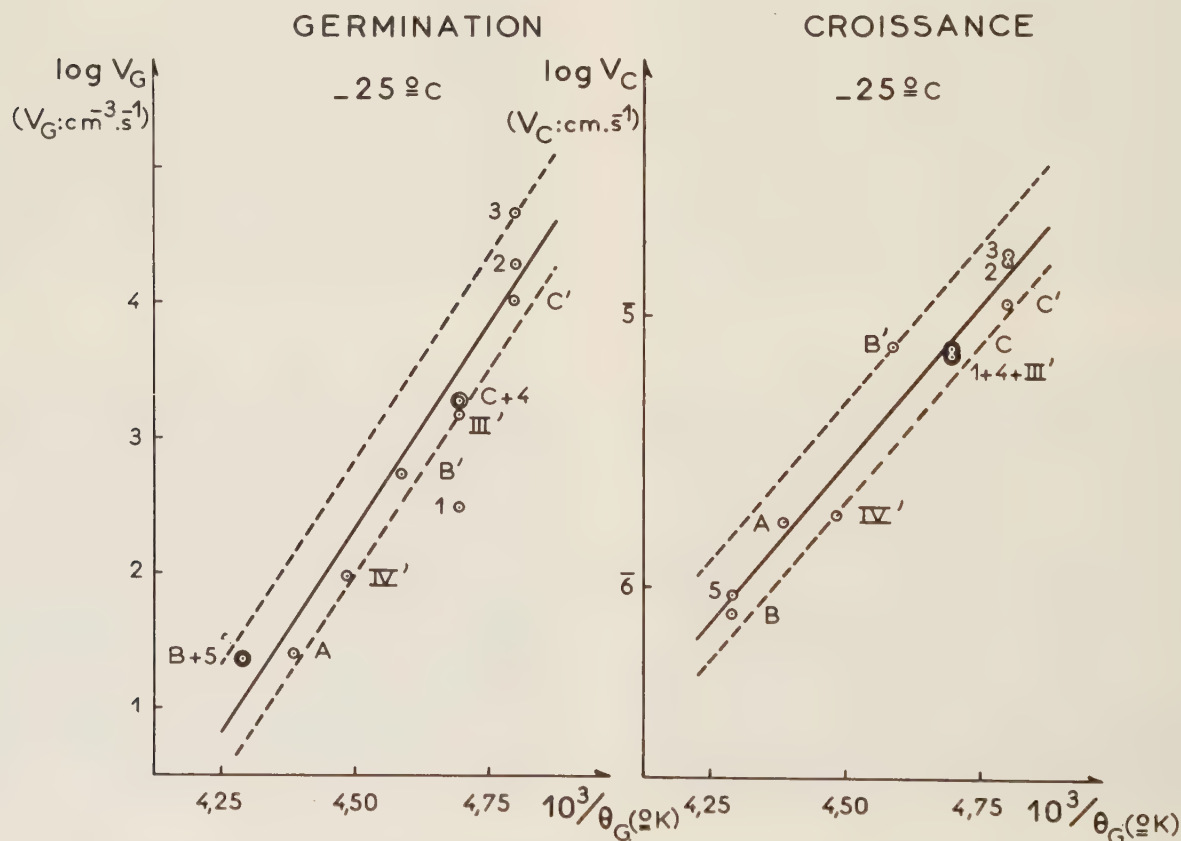


Fig. 21. — Variation des vitesses de germination et de croissance des cristaux avec la température de détection des premières microcristallites par diffraction des rayons X pour les monocristaux : A, B, C, B', C', les cinq prélèvements le long du barreau purifié par fusion de zone et les deux échantillons d'aluminium III' et IV'.

CONCLUSION

Nous avons précisé les importances relatives de deux facteurs dont les variations influencent la cinétique de la recrystallisation de l'aluminium polycristallin et monocristallin. Ce sont : l'orientation cristalline par rapport aux paramètres géométriques de la déformation appliquée et le degré de pureté du métal. Pour connaître séparément l'influence de ces deux facteurs, il est nécessaire d'utiliser des monocristaux dont l'orientation cristalline soit parfaitement définie et dont le degré de pureté soit déterminé par des analyses aussi complètes que possible.

L'influence de l'orientation, importante dans le cas des monocristaux d'aluminium de double électrolyse, est relativement plus faible pour les métaux de pureté supérieure. D'autre part, l'influence du degré de pureté est plus importante dans le cas des monocristaux qui possèdent une orientation conduisant après déformation à une recrystallisation peu rapide. Les facteurs orientation et pureté doivent être étroitement associés, l'influence du degré de pureté n'est pas toujours prépondérante. Ainsi, nous avons montré qu'un monocristal provenant d'un aluminium de double électrolyse présente des vitesses de recrystallisation plus grandes qu'un monocristal du même aluminium purifié par fusion de zone mais d'orientation différente.

Il est possible d'établir une relation entre l'orientation initiale des monocristaux avant déformation et la ciné-

tique de la recrystallisation au cours des recuits ultérieurs. L'examen des figures de pôles montre que la texture de déformation des échantillons polycristallins peut être considérée comme résultant de la superposition des textures obtenues, après une même déformation, pour les différents monocristaux.

Parmi les paramètres caractéristiques de la cinétique de la recrystallisation, le plus influencé par les variations de l'orientation cristalline et du degré de pureté est la vitesse de germination des cristaux. L'énergie d'activation correspondante peut dépendre de l'origine du métal étudié mais semble insensible à l'augmentation du degré de pureté obtenue par le traitement de fusion de zone. Toute variation de la vitesse de germination est accompagnée d'une variation de la vitesse de croissance des cristaux de même sens mais d'amplitude beaucoup plus faible. L'énergie d'activation relative à la croissance dépend étroitement du degré de pureté. L'énergie d'activation pour la recrystallisation, déterminée d'après les fractions de surface recrystallisée, est intermédiaire, pour les échantillons très purs, entre les deux précédentes et varie comme l'énergie de croissance.

L'étude d'échantillons monocristallins de même orientation prélevés le long d'un barreau de fusion de zone a permis de mettre en évidence le rôle important joué par la présence de quantités infimes d'impuretés, principalement des éléments de transition qui ont tendance à se rassembler en tête des barreaux au cours du traitement de purification. Enfin, nous avons observé un abaissement considérable des valeurs des vitesses de recrystallisation dû à la présence d'inclusions finement dispersées dans des monocristaux d'aluminium purifié par fusion de zone à partir d'un métal préparé par électrolyse en milieu organique.

BIBLIOGRAPHIE

- (1) H. CHOSSAT, M. MOUFLARD, P. LACOMBE et G. CHAUDRON. — *C. R. Acad. Sc.*, **227** (1948), 432.
G. CHAUDRON. — *Rev. Mét.*, **47** (1950), 93.
- (2) W.G. PFANN. — *Trans. AIME*, **194** (1952), 747. *Zone Melting*, J. Wiley and Sons, New York (1958).
F. MONTARIOL, Ph. ALBERT et G. CHAUDRON. — *Rev. Mét.*, **50** (1953), 768.
G. CHAUDRON. — Contribution au problème des traces ultimes d'impuretés dans les métaux. Conférence à la Société Chimique, Nancy le 26 novembre 1953. *Bull. Soc. Chim. France* (1954), 419.
- (3) F. MONTARIOL, R. REICH, Ph. ALBERT et G. CHAUDRON. — *C. R. Acad. Sc.*, **238** (1954), 815.
Ph. ALBERT et J. LE HERICY. — *C. R. Acad. Sc.*, **242** (1956), 1612.
- (4) G. REVEL. — Thèse, Université de Paris (mai 1965).
- (5) O. DIMITROV. — *Mém. Sci. Rev. Mét.*, **57**, n° 10 (1960), 787.
- (6) Ph. ALBERT. — Thèse Université de Paris (1955); *Ann. Chim.* 13^e série, **1** (1956), 827.
N. DESCHAMPS, A. LOEILLOT et Ph. ALBERT. — *C. R. Acad. Sc.*, **254** (1962), 682.
A. LESBATS. — *Ann. Chim.*, **3** (1968), 293.
- (7) R. FROMAGEAU et Ph. ALBERT. — *C. R. Acad. Sc.*, **258** (1964), 199.
- (8) G. WASSERMANN. — *Texturen Metallischer Werkstoffe*, J. Springer, Berlin (1939).
- (9) Hsun Hu, P.R. SPERRY et P.A. BECK. — *Trans. AIME*, **194** (1952), 76 (*J. of Metals*, janv. 1952).
- (10) F. WEVER. — *Z. Phys.*, **28** (1924), 69; *Trans. AIME*, **93** (1931), 51.
- (11) R. FROMAGEAU. — *C. R. Acad. Sc.*, **259** (1964), 4667.
- (12) G.V. VARGHA et G. WASSERMANN. — *Metallwirtschaft*, **12** (1933), 511.
- (13) K. LÜCKE. — *Z. Metallkunde*, **45** (1954), 86.
- (14) F. HAESSNER. — *Z. Metallkunde*, **54** (1963), 98.
- (15) W.R. HIBBARD Jr. et W.R. TULLY. — *Trans. AIME*, **221** (1961), 336.
- (16) B.A. MISHIN. — *Physics Metals Metallography*, **11** (1961), 89.
- (17) J. MANENC. — Thèse, Université de Poitiers (juill. 1953).
- (18) I.L. DILLAMORE et W.T. ROBERTS. — *Acta Met.*, **12** (1964), 281.
- (19) G. REVEL et Ph. ALBERT. — *C. R. Acad. Sc.*, **257** (1963), 2101.
- (20) R. FROMAGEAU et Ph. ALBERT. — *C. R. Acad. Sc.*, **260** (1965), 895.
- (21) O. DIMITROV. — *Mém. Sci. Rev. Mét.*, **57**, n° 11 (1960), 852.

- (22) R. FROMAGEAU et G. REVEL. — *C. R. Acad. Sc.*, **266**, série C (1968), 70.
- (23) R. FROMAGEAU et G. REVEL. — *C. R. Acad. Sc.*, **266**, série C (1968), 258.
- (24) M. AVRAMI. — *J. Chem. Phys.*, **8** (1940), 212.
- (25) W.A. JOHNSON et R.F. MEHL. — *Trans. AIME*, **135** (1939), 416.
W.A. ANDERSON et R.F. MEHL. — *Trans. AIME*, **161** (1945), 140.
- (26) G. REVEL et Ph. ALBERT. — *C. R. Acad. Sc.*, **257** (1963), 2650.
G. REVEL. — *C. R. Acad. Sc.*, **259** (1964), 4031.
- (27) A. BOHN, H.C. GINSBERG et W. REUTER. — *Aluminium* (All.), mai (1961), 267.
- (28) C. ZENER cité par C.S. SMITH. — *Trans. AIME*, **175** (1948), 15 (communication privée à l'auteur).
- (29) J.E. BURKE et D. TURNBULL. — *Prog. in Met. Phys.*, **3** (1952), 220.
- (30) M. DEYRIS-BOURBOUZE. — Thèse, Université de Paris (déc. 1966).
M. DEYRIS et Ph. ALBERT. — *C. R. Acad. Sc.*, **262** (1966), 1675.
Ph. ALBERT, M. DEYRIS et G. REVEL. — *C. R. Acad. Sc.*, **262** (1966), 1774.

